

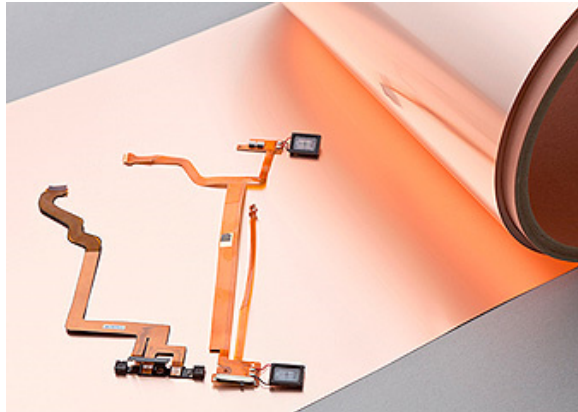
超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト（超超PJ）  
最終成果報告会

# 高周波対応フレキシブル 誘電材料の研究開発

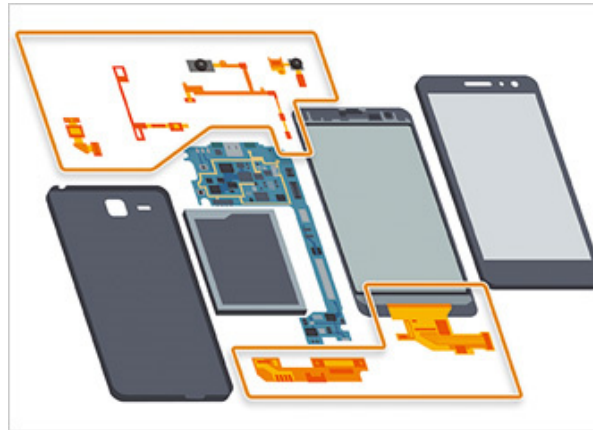
2022年1月18日（火）

日鉄ケミカル & マテリアル株式会社  
藤元 伸悦

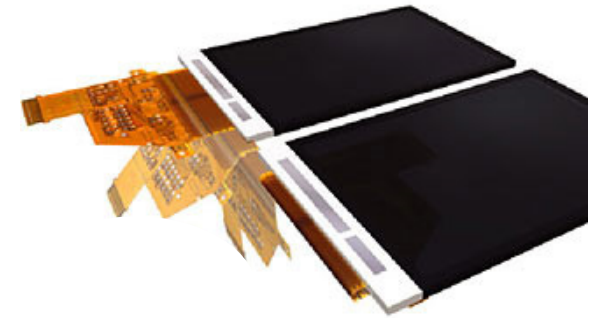
弊社の回路基板材料と適用例  
フレキシブル回路基板材料  
(ポリイミド+銅箔)



スマートフォンの  
回路基板への適用例



液晶ディスプレイの  
接続部への適用例



図引用 日鉄ケミカル&マテリアル株式会社のホームページ <https://www.nscm.nipponsteel.com/functional/>



ニーズ：IoT, スマートフォン, 5G, 6Gにおける大容量・高速伝送

800MHz, 2GHz

3.6GHz

90GHz

300GHz

1G, 2G, 3G

4G(2010)

5G(2020)

6G(2030)

参考：NTTドコモホワイトペーパー5Gの高度化と6G, 2020  
総務省 Beyond 5G推進戦略 - 6Gへのロードマップ -

Frequency



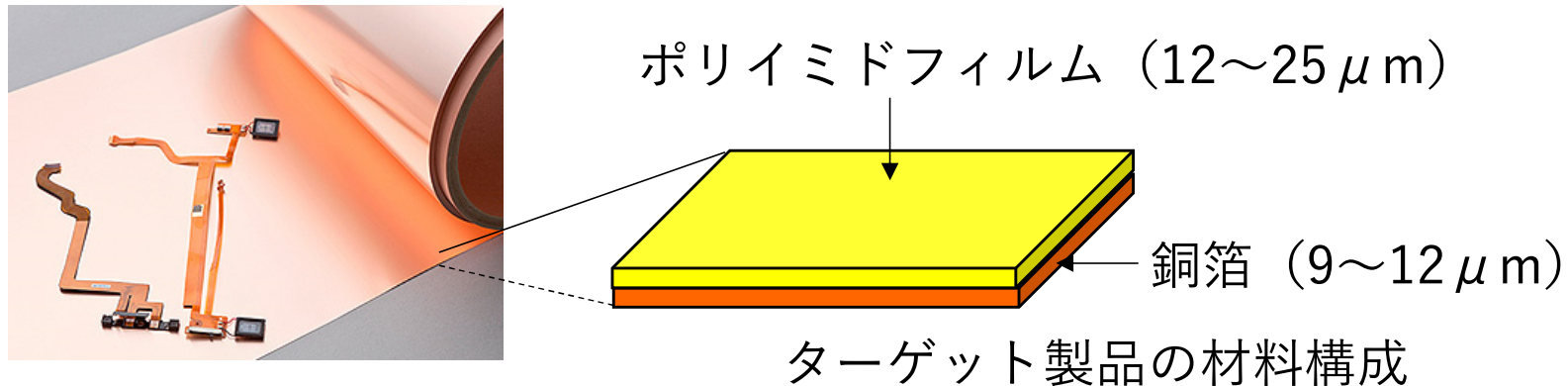
IEEE Spectrum 22 May, 2018

5G, 6Gでは高周波帯域の利用が見込まれるが、一般的に周波数が上がるほど伝送損失は増大するため、高周波帯域における伝送損失の低減が求められる。

## 伝送損失

= 誘電損（ポリイミドフィルム） + 導電損（銅箔）

超超PJでは誘電損に着目



図引用 日鉄ケミカル&マテリアル株式会社のホームページ  
<https://www.nscm.nipponsteel.com/functional/>

$$\alpha_D = k \frac{f}{c} \sqrt{\epsilon'} \tan \delta$$

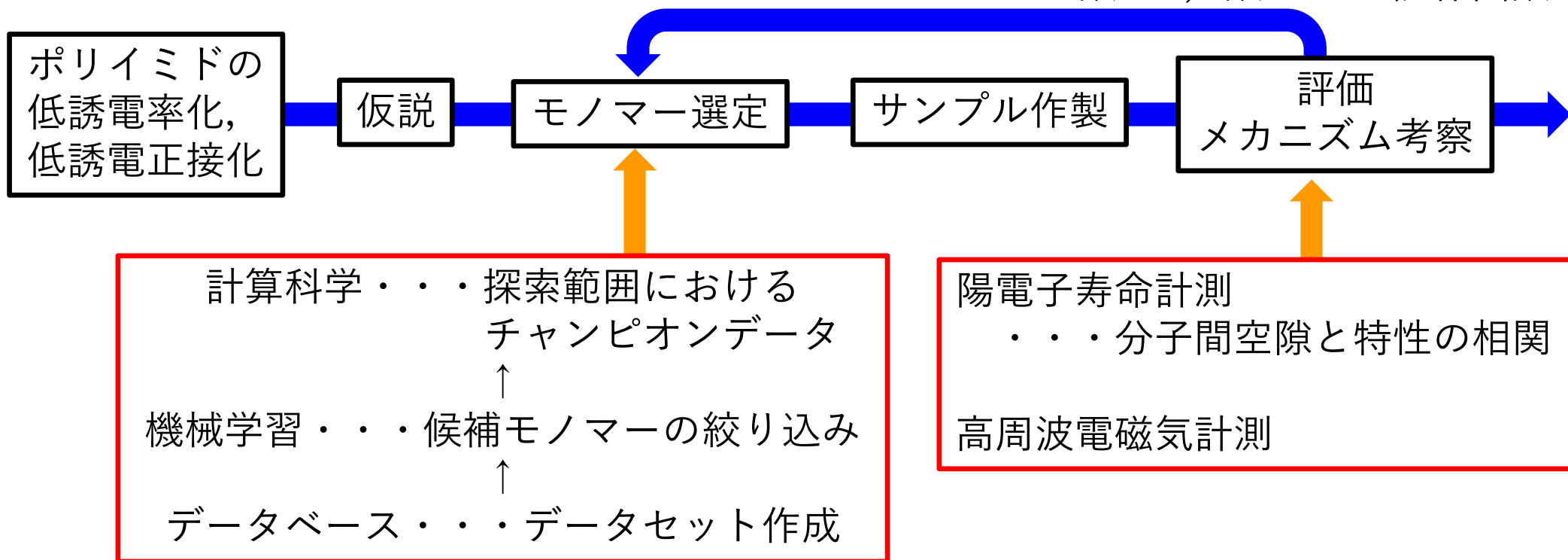
$\alpha_D$  : 誘電損     $k$  : 定数     $f$  : 周波数  
 $c$  : 光速度     $\epsilon'$  : 比誘電率     $\tan \delta$  : 誘電正接

伝送損失，誘電損を低減させるために，マテリアルズインフォマティクスを活用し，ポリイミド材料の低誘電率，低誘電正接の両立を目指す。

# 超超P Jにおける開発の方向性およびテーマの目標

マテリアルズインフォマティクス (MI) の活用スキーム

数100, 数1000の試作回数



## 目標

開発期間1/20の検証

汎化性能の高い回帰モデルの構築（機械学習の決定係数：0.6以上）

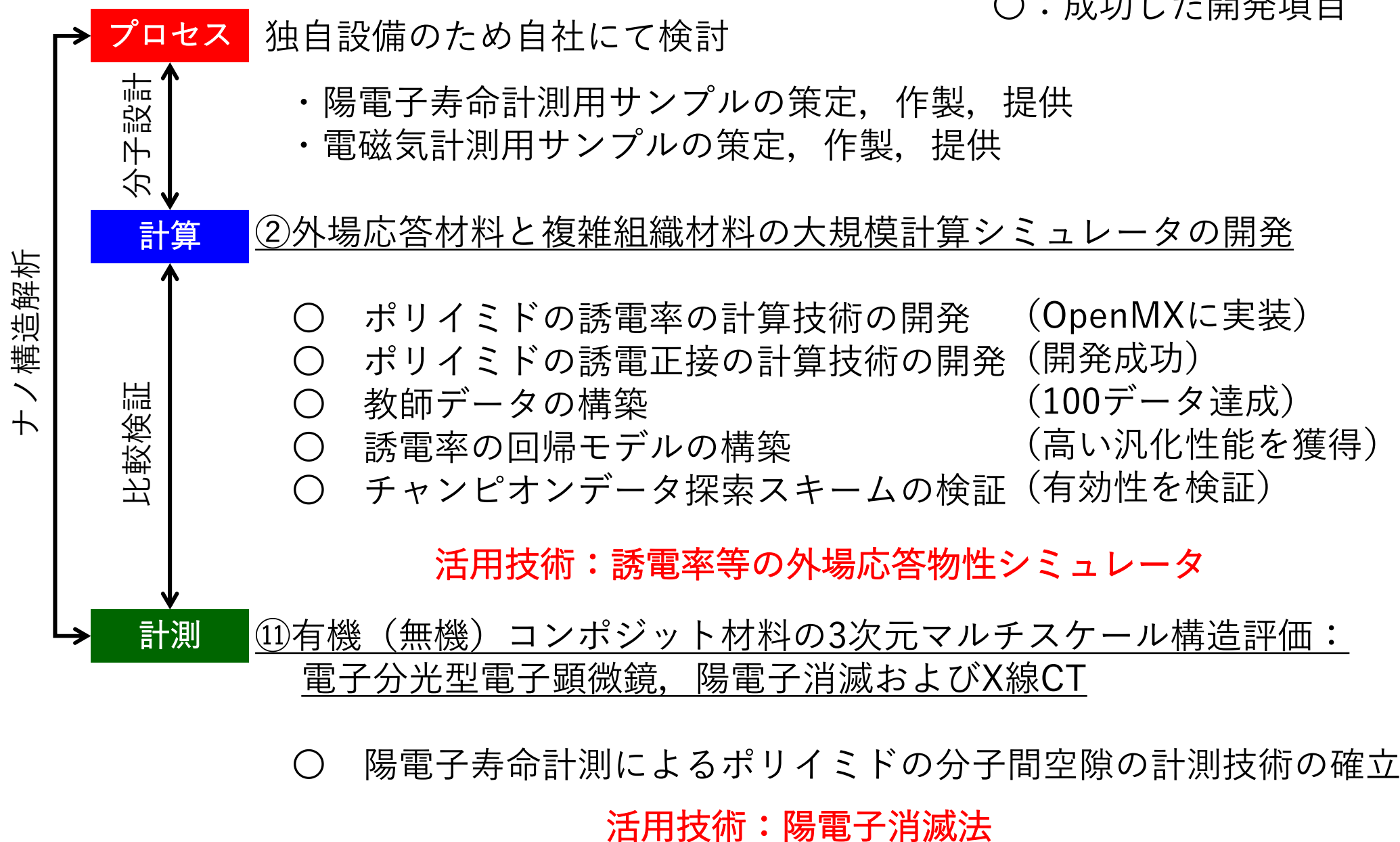
※汎化性能：未知のテストデータに対する予測能力

## 本検討の実施内容

低誘電率，低誘電正接を発現するポリイミドの材料探索のケーススタディを実施し，提案したプロジェクト型の材料開発スキームの有効性を検証する。

## 各要素技術の開発状況

○：成功した開発項目



## 開発期間1/20の検証

→提案した材料開発スキームにおいて、教師データ蓄積、機械学習、計算科学、計測評価等の一連の流れを検証し、**開発期間約1/20を達成した。**

## 汎化性能の高い回帰モデルの構築

→本プロジェクトで開発された数密度ECFPをモデル素材に適用することにより、汎化性能の高い**誘電率の回帰モデルの構築に成功した。**

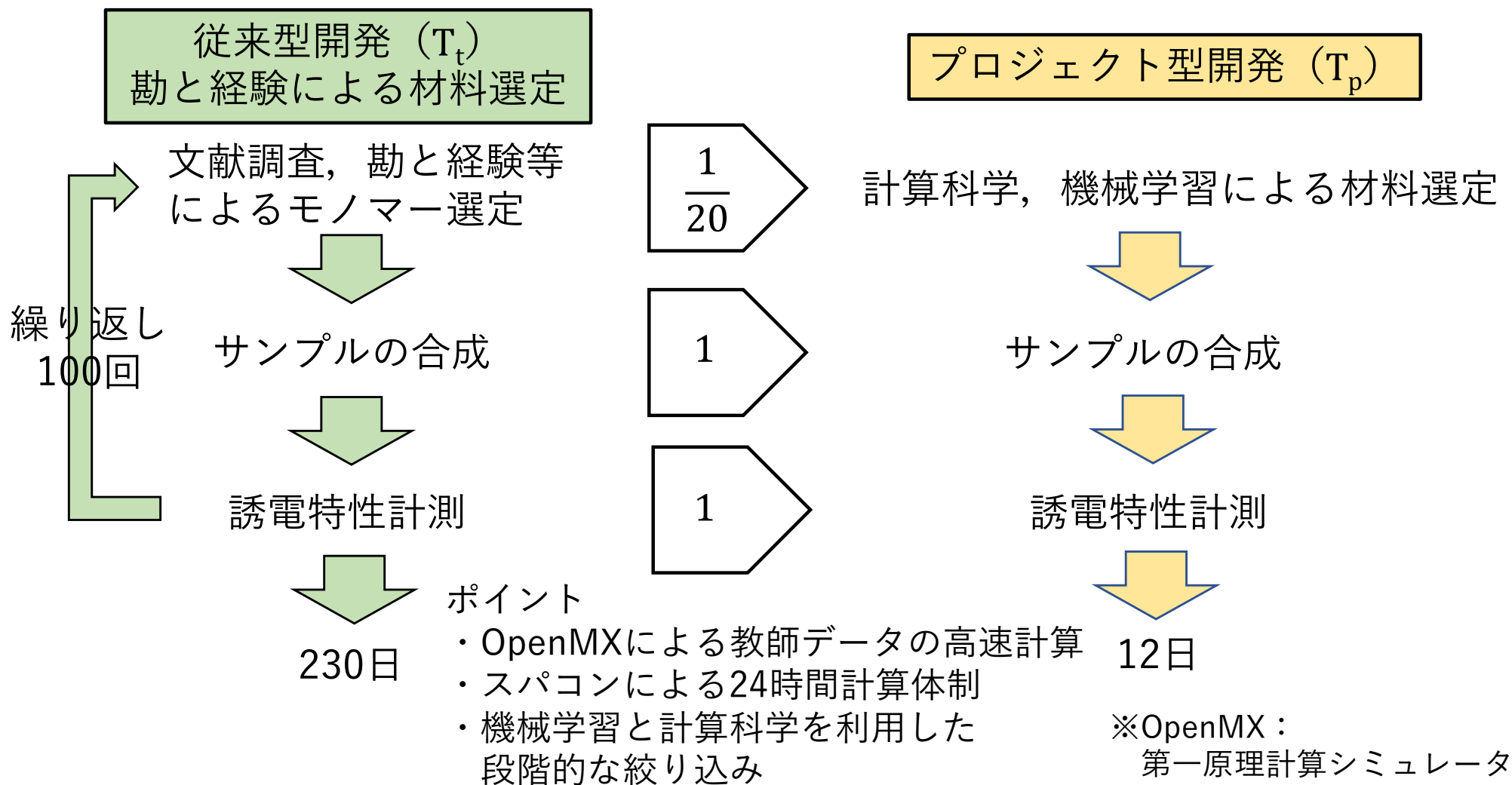
## 他テーマとのPJ内連携

→統計数理研究所との連携により誘電正接の影響因子を調査し、分子グラフの化学構造記述子の観点から概ね理に適う結果を得た。

→陽電子消滅法によるポリイミドの分子間空隙の計測手法の高度化に成功した。

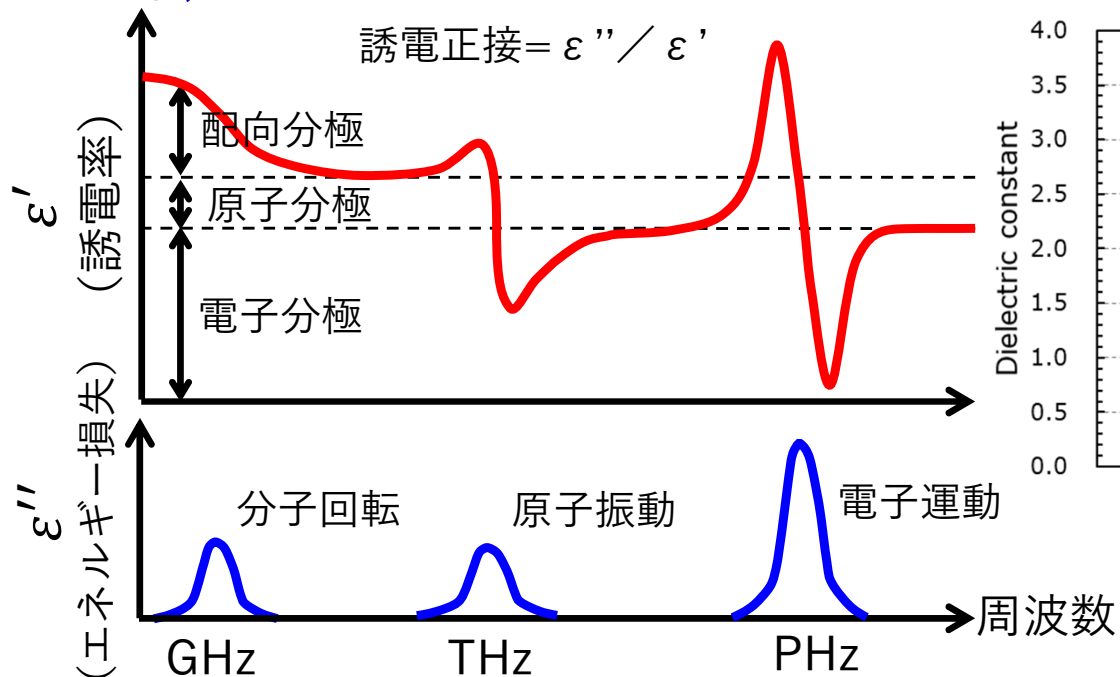
# 開発期間短縮に関して

ポリイミドのモノマーの組み合わせ約800通りの中から、低誘電率、低誘電正接を発現するモノマーの組み合わせを探索するケーススタディを実施。ラボ実験を想定。

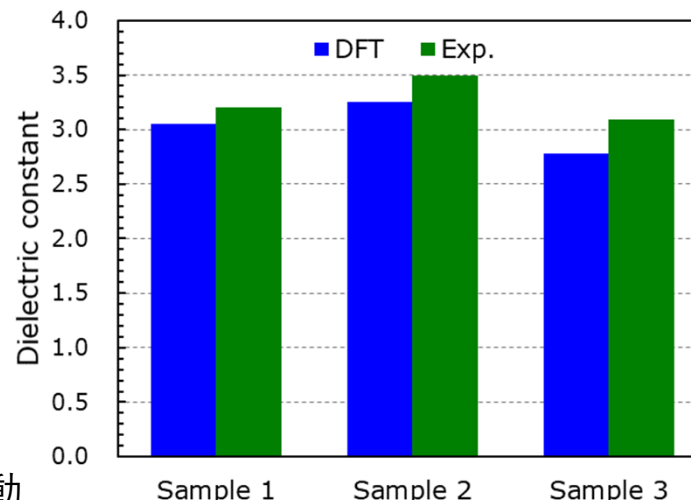


提案した材料開発スキームにおいて、教師データ蓄積、機械学習、計測評価等の一連の流れを検証し、開発期間 ( $T_p / T_t$ ) 約1/20を達成した。

## 誘電率, 誘電正接の周波数依存性の典型図



## 誘電率の計算結果と実測の比較



対象材料  
ポリイミドの  
モデル素材

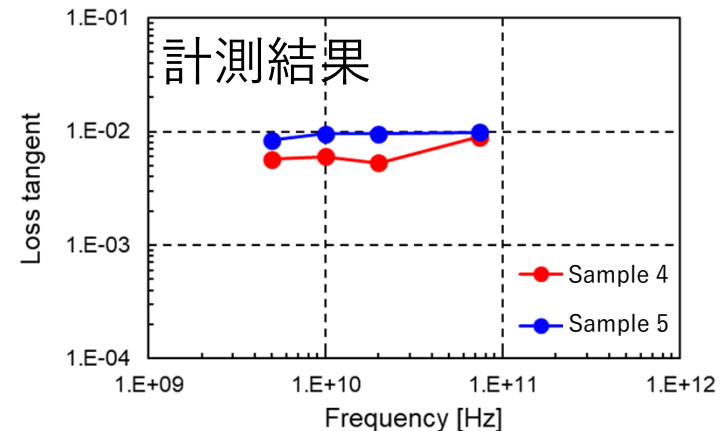
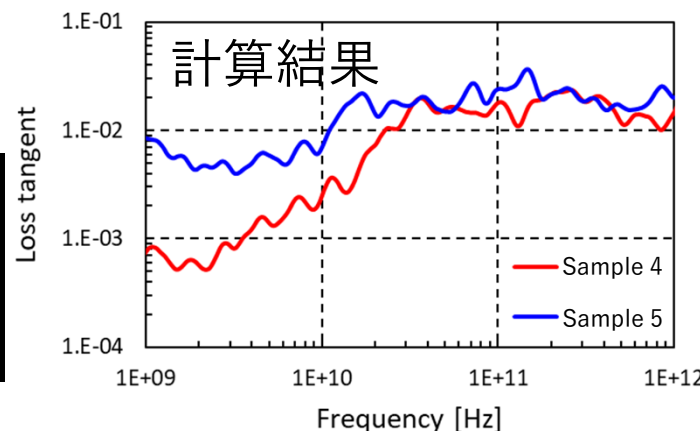
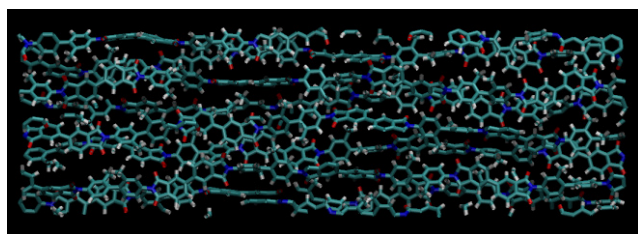
シミュレータ  
OpenMX

※計算結果は  
電子分極の寄与のみ

電子分極由来の誘電率の計算結果は、  
実測と定性的な傾向が一致した。

## 分子動力学シミュレーションによる誘電正接計算の一例

モデル素材の  
分子動力学モデル

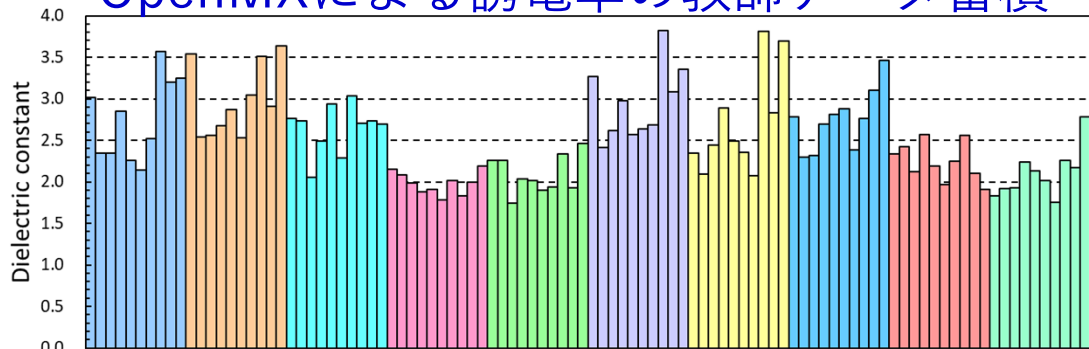


誘電正接の計算結果は、実測と概ね同様の周波数依存性の傾向を示した。

これらの技術を用いてマテリアルズインフォマティクスに展開

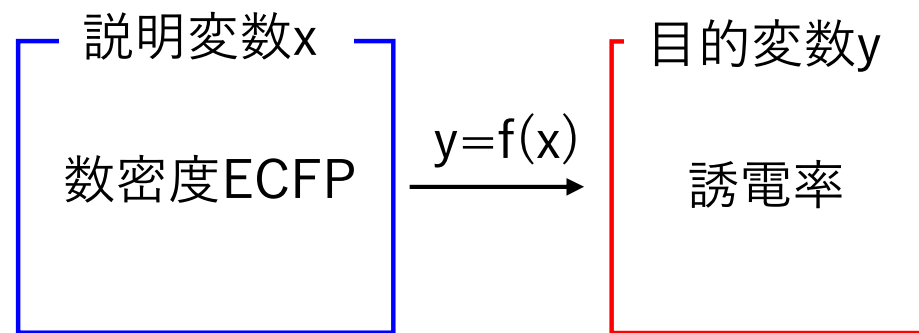


## OpenMXによる誘電率の教師データ蓄積



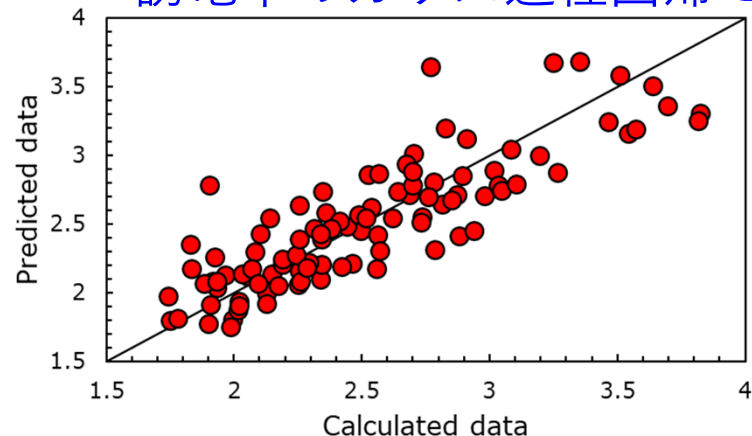
ポリイミドの教師データ100個の蓄積を達成

## 機械学習



DPF（データプラットフォーム）への登録のため整備

## 誘電率のガウス過程回帰モデルの構築



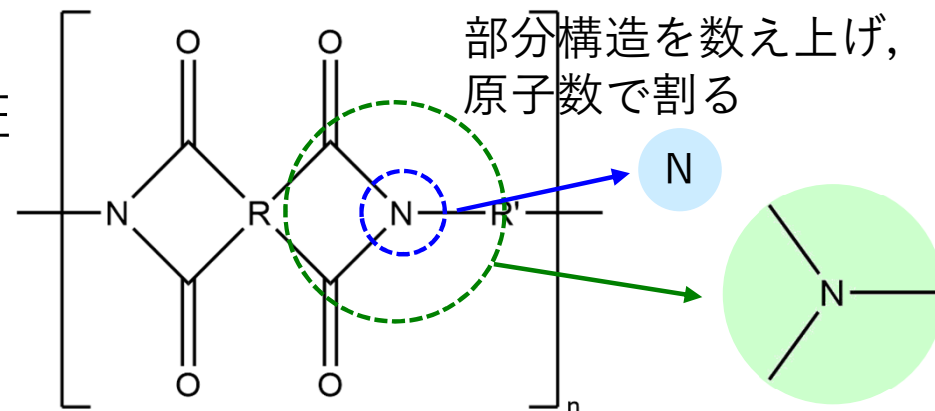
10分割交差検証

決定係数

$$R^2=0.73$$

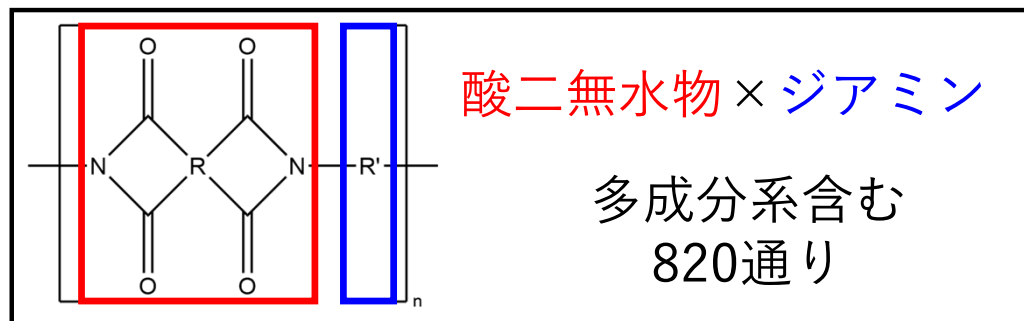
高い汎化性能  
を獲得

数密度ECFP（超超プロジェクトで開発）

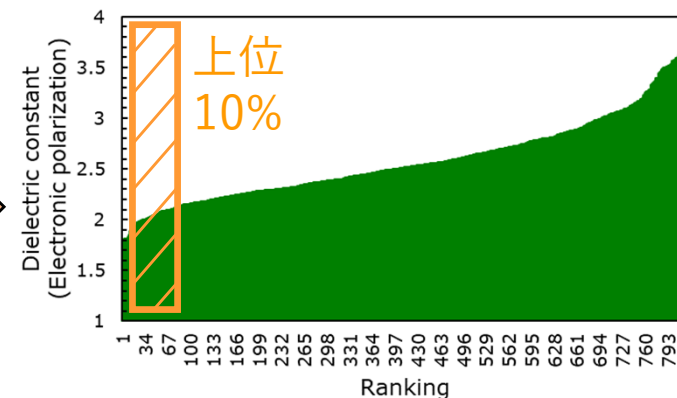


部分構造を数え上げ、  
原子数で割る

探索範囲の中から低誘電率材料を探索・絞り込み

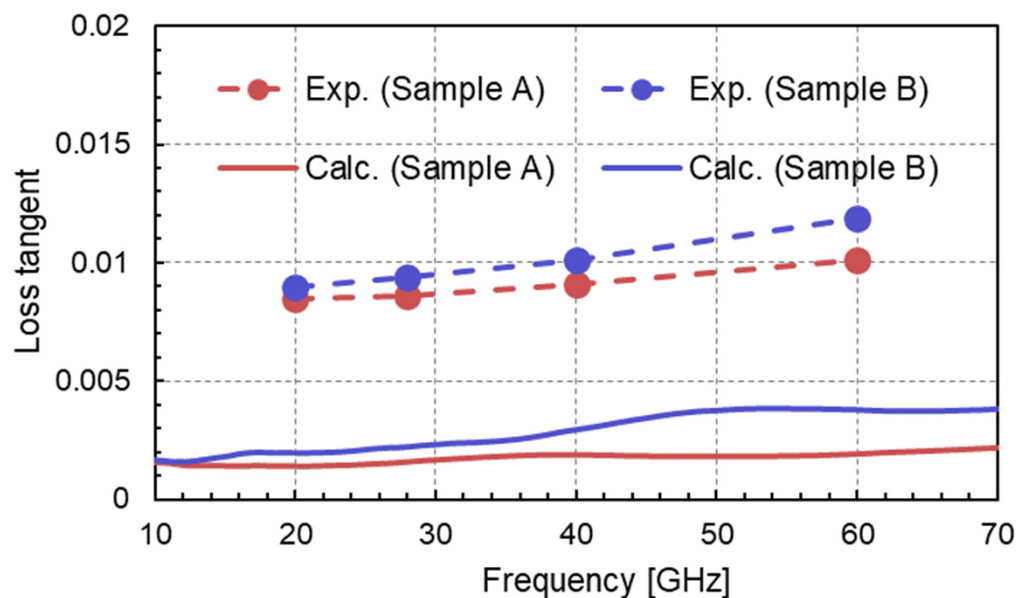
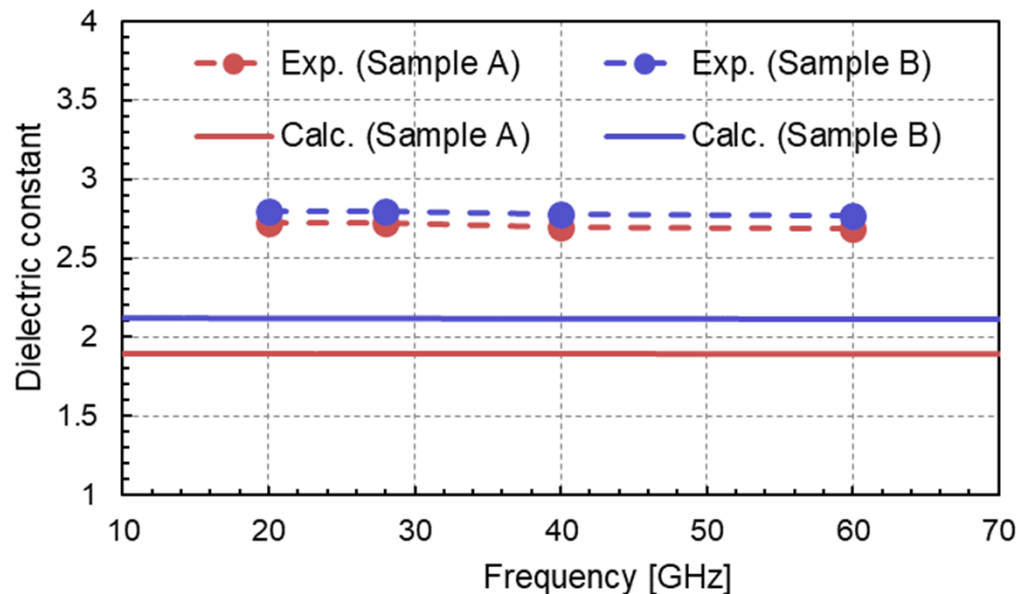


予測

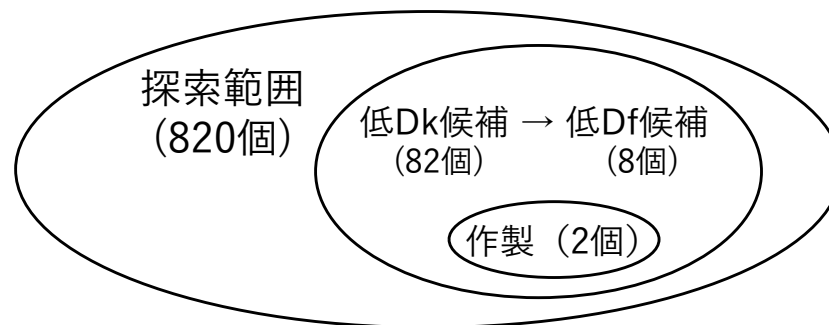


1次スクリーニングで上位10%を選定

- 分子動力学シミュレーションを用いてさらに10%に絞り込み，低誘電正接材料を選定
- その中から2個のサンプルの作製と計測評価を実施



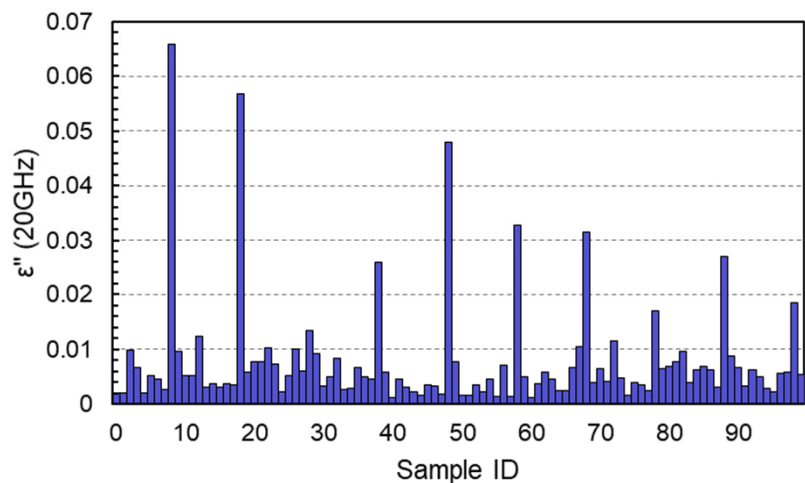
- 820個から2個まで絞り込み  
絞り込み率：約0.24%



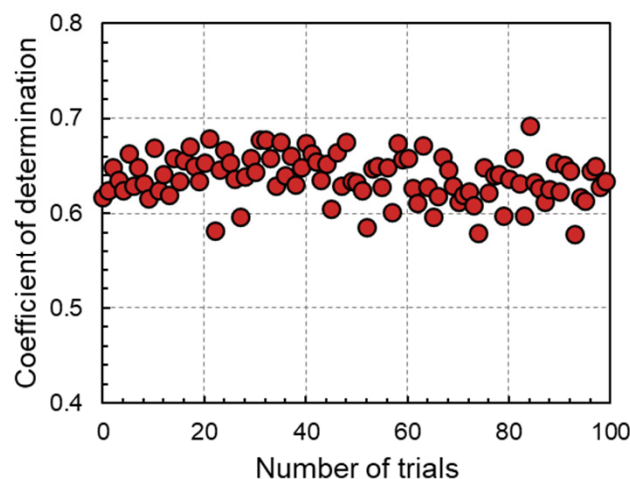
- Sample Aについては，低誘電の目安（誘電率：3，誘電正接：0.01 とする）を満足する結果となった。
- 本スキームの有効性を確認  
開発期間1/20達成
- さらなる低誘電率化，低誘電正接化のためには，教師データの多くの蓄積と探索範囲の拡張が必要と考える。

材料開発スキームとは別に、誘電正接の回帰モデル構築，支配因子の解明を実施

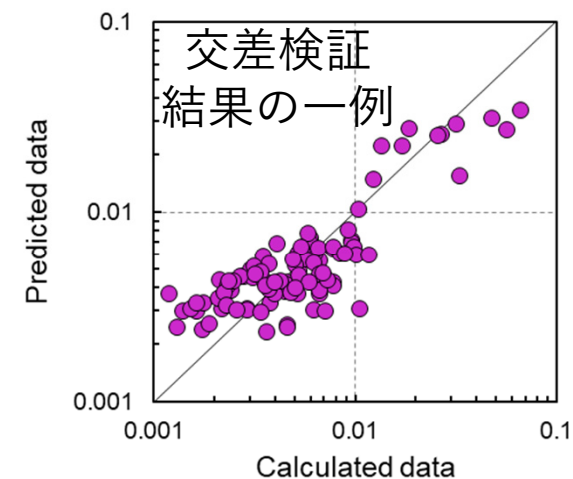
ポリイミドの  
損失  $\epsilon''$  (誘電正接) 100データ



分子グラフの化学構造記述子を用いた  
LASSO回帰による交差検証

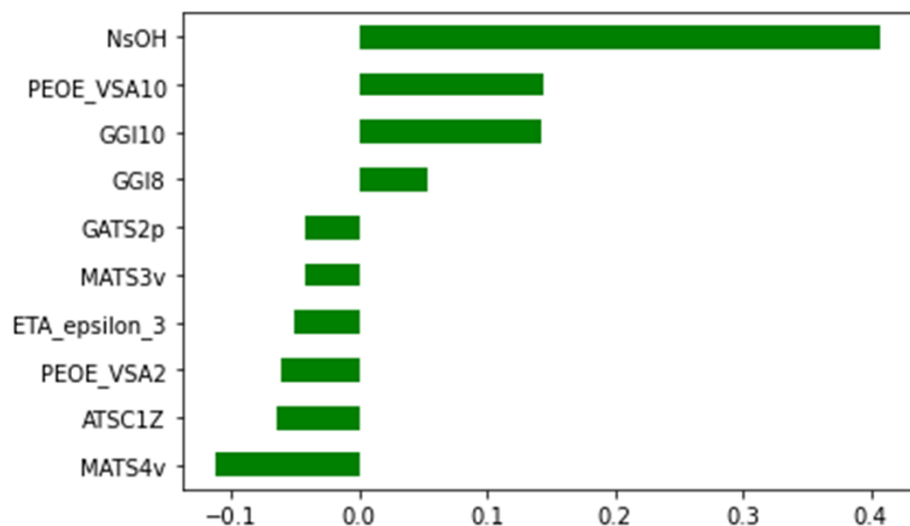


平均の決定係数0.64



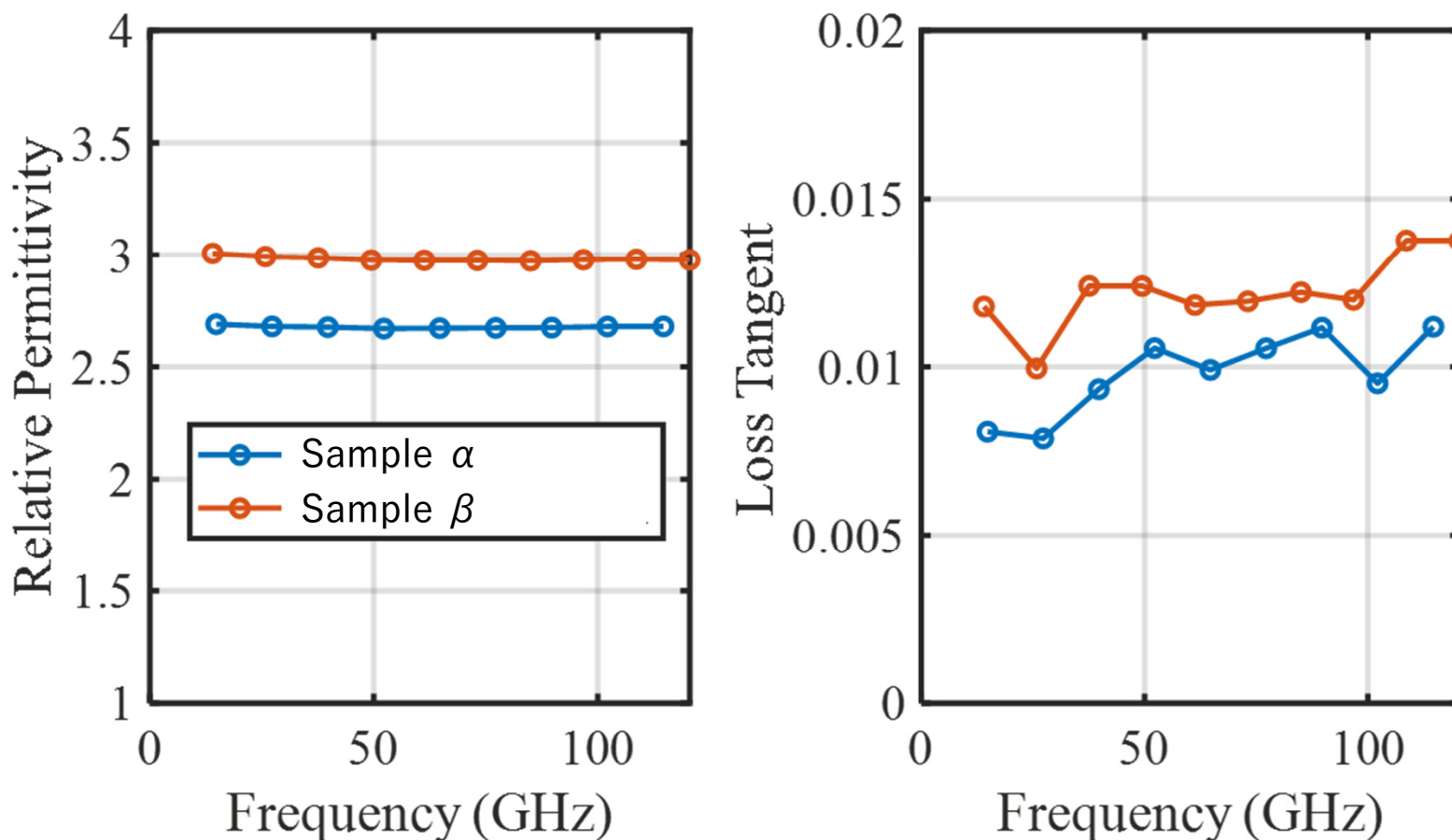
試行84回目のテストデータ  
における決定係数 $R^2=0.69$

説明変数の誘電正接への影響度



- 誘電正接への影響度を解釈していくと、概ね理に適う結果を得ている。
- 分子グラフ（トポロジカル距離）の観点から、低誘電正接の分子設計に関する新たな知見を得られる可能性。
- 誘電率の回帰モデルと併用することにより、さらなる開発期間短縮に寄与。

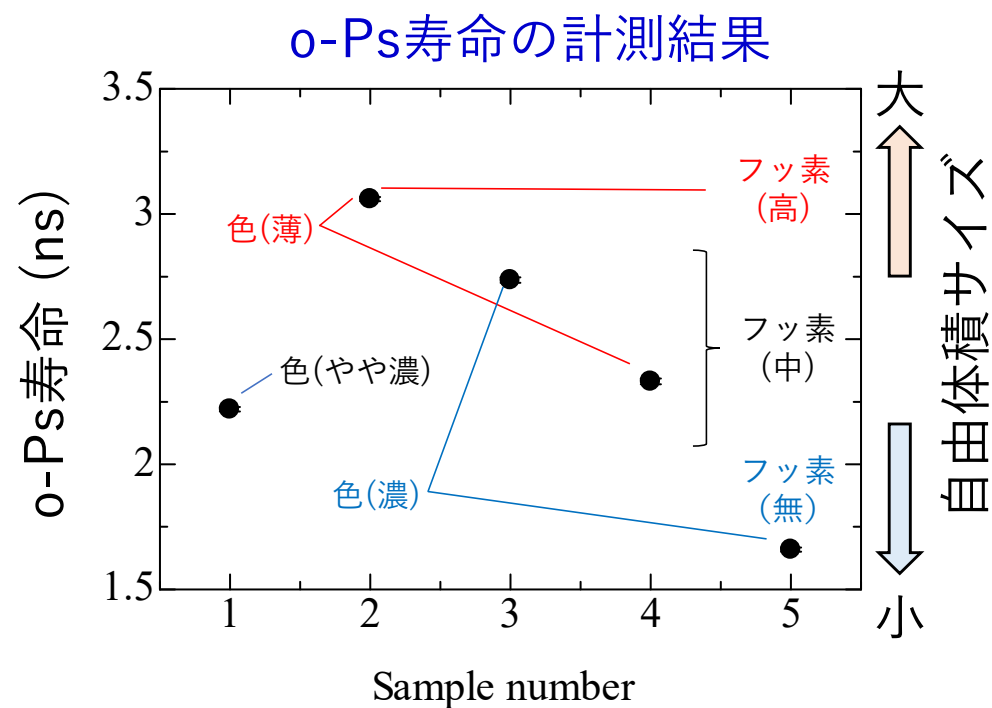
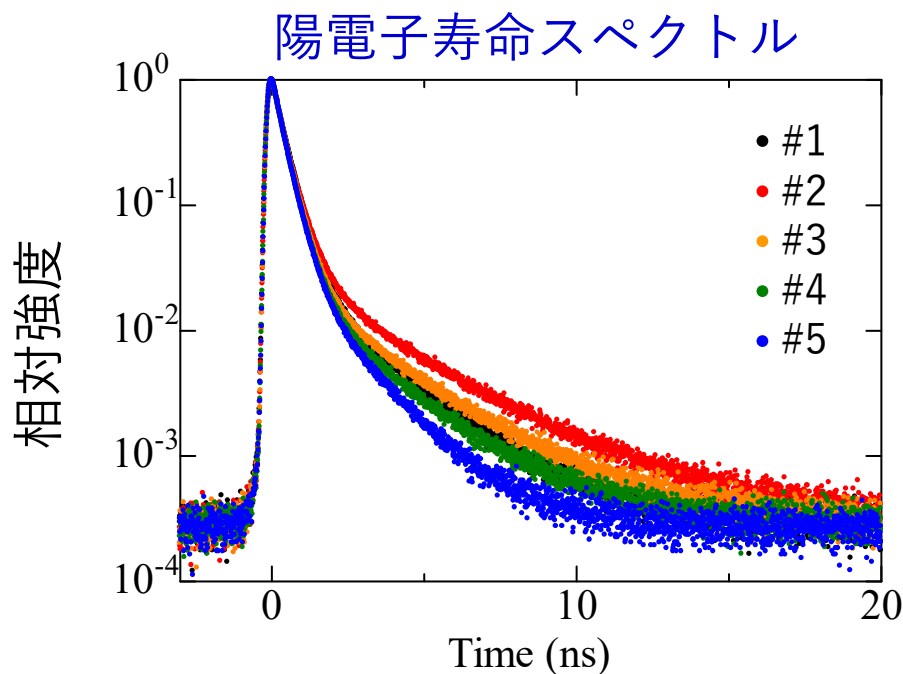
誘電正接の回帰モデルにより提案された化合物を作製し、プロジェクト内連携で100GHz以上の高周波電磁気計測を実施（※産総研による計測）



現状としては、高周波帯域における誘電特性のデータはほとんどないため、高周波へのシフトを見据えるとこのデータそのものに価値があると考えます。今後、誘電正接の周波数依存性を制御する分子設計技術に繋げていきたい。

陽電子寿命の計測が困難なポリイミド材料に対して、計測手法の高度化に成功  
 (※産総研による計測)

モデル素材  
 の外観  
 (#1~#5)



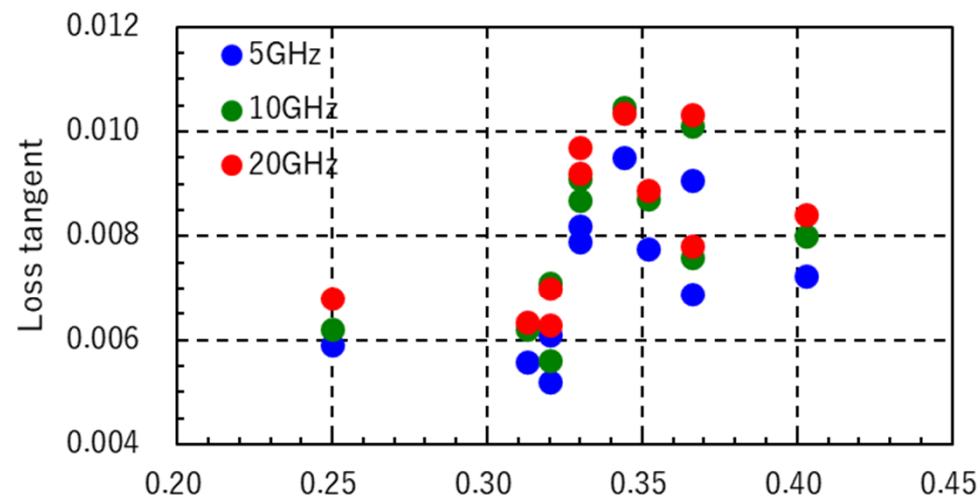
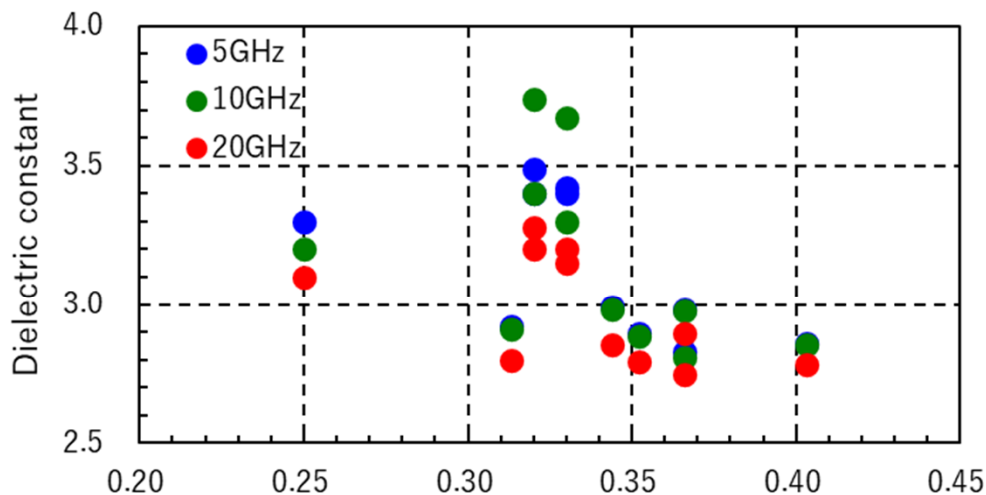
フッ素系，脂環系試料で  
 o-Ps 寿命成分を確認

※o-Ps：オルトポジトロニウム

量子モデルで予想される分子間空隙は  
 0.25 nm ~ 0.37nm

ポリイミドの分子間空隙の新たな評価技術として確立

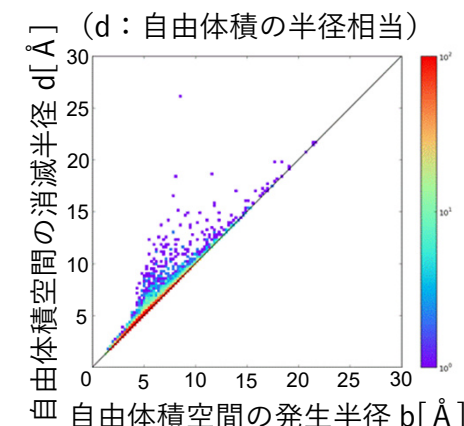
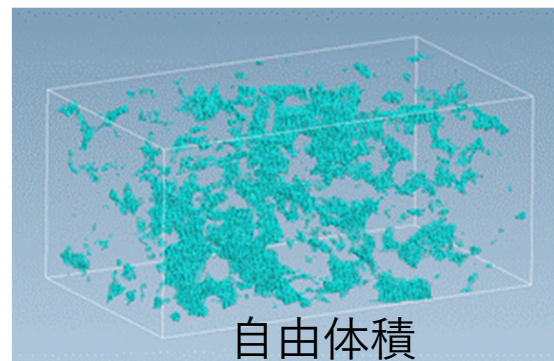
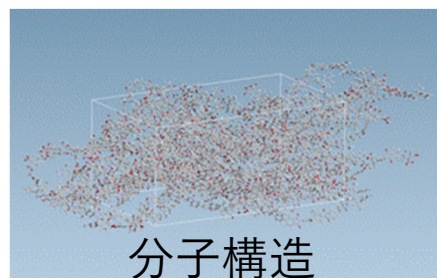
## 分子間空隙（計測）と誘電特性（計測）の関係 モデル素材を対象に相関調査



- 誘電特性だけでなく，その他特性も含めて分子間空隙（自由体積パラメータ）で整理していくことにより，様々な考察，知見が得られる可能性。
- 分子動力学計算との比較により，自由体積を指標に，高次構造の比較検証等に使用できる。

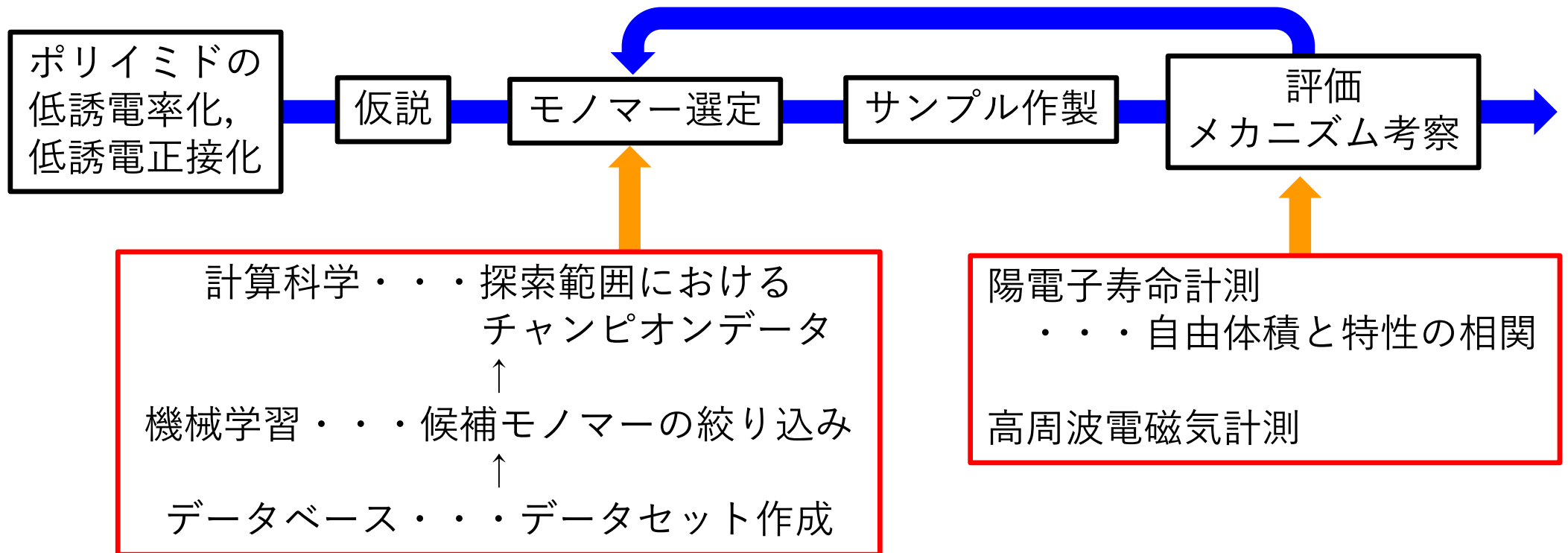
### 分子動力学計算&パーシステントホモロジーによる自由体積計算例

実施例)  
自由体積の  
定量化に成功



# まとめ

- ・ OpenMXに実装された誘電関数の計算機能により，教師データの蓄積を達成した。
- ・ 超超プロジェクトで開発された数密度ECFPをポリイミド系材料に応用し，汎化性能の高い回帰モデルを構築することができた。
- ・ 機械学習により分子グラフの観点から低誘電正接の分子設計に関する新たな知見を得られる可能性があると考える。
- ・ 陽電子寿命の計測が困難なポリイミド材料に対して，計測手法の高度化に成功した。
- ・ プロジェクト型の材料開発スキームの検証を行い，その有効性を示した。



## 本PJ成果の展開・活用

### ・企業での展開・活用

超超プロジェクトのNEDO助成事業（参画中）

弊社の素材開発への活用

→種々の樹脂系に横展開

→材料特性のトータルバランス最適化

### ・社会的な展開・活用

超超プロジェクトのコンソーシアムへの参加

DPF（データプラットフォーム）の利活用



以上